

#### 4) 使用条件および用途

- ① 基ポリマーについては使用条件として対象食品分類、最高使用温度、最長使用期間、最終製品の形態（ボトル、シート等）と最大厚さを示す。
- ② 添加剤については、対象ポリマー、ポリマーに対する最高添加量、用途（安定剤、滑剤、可塑剤、ポリマー添加剤等）及び①の使用条件を示す。

### 3 溶出試験及び分析法

#### 1) 溶出試験法

評価対象物質からの添加物量は以下に示す方法により試験を行う。ただし、材質中の分析結果から、分析対象物質が全量溶出したと仮定して計算した値を用いて推定一日摂取量（EDI）を求める場合は試験を省略できる。

溶出試験法としては、ボトル、カップ、袋など試験溶液を充填できる試料については充填法、充填できない試料については片面溶出器等を用いる片面法が望ましい。但し、両面が同等とみなせる場合には浸漬法で実施しても良い。

#### 2) 試験試料

溶出試験に用いる試料は、使用対象条件の全てにおいて食品擬似溶媒への溶出濃度が最高になると予想されるものを作成する。例えば、基ポリマーの場合は、分子量、密度、架橋、組成度等、又モノマーや添加剤の場合は最高使用量を考慮して作成する。複数ポリマーに使用される添加剤の場合は、代表として使用対象ポリマーの中で分子量、密度、架橋、組成等を考慮し一番溶出し易いと予想される基ポリマーに配合して評価しても良い。

#### 3) 溶出試験条件

##### (1) 食品擬似溶媒

各食品分類に対して用いる擬似溶媒は表1の通りとする。

表1 食品分類と食品擬似溶媒の関係

食品分類	食品擬似溶媒
水性食品 (pH>5)	蒸留水
水性食品 (pH≤5)	4%酢酸
酒類 (エタノール≤20%)	20%エタノール
酒類 (エタノール>20%)	食品のエタノール含量以上のエタノール濃度
油性食品	オリーブ油又は95%エタノール*

\* n-ヘプタン、50%エタノール、イソオクタン等はオリーブ油と同等以上の溶出濃度であることが確認できる場合は使用しても良い。

##### (2) 時間と温度

使用時間及び温度条件と試験を行う時間と温度条件の関係は表2の通りとする。複数の条件で使用される場合は溶出濃度がより高くなる試験条件のみで試験を行っても

良い。ただし、当該物質の使用条件を考慮した場合にこれらの試験条件でカハー出来ない時（例 高温で滅菌後長期間保存するなど）は別途最適条件を設定して試験する。

表2 使用条件と試験条件

	使用条件	試験条件
時間(t)	$\leq 0.5$ 時間	0.5 時間
	$0.5 \text{ 時間} < t \leq 1$ 時間	1 時間
	$1 \text{ 時間} < t \leq 2$ 時間	2 時間
	$2 \text{ 時間} < t \leq 4$ 時間	4 時間
	$4 \text{ 時間} < t \leq 24$ 時間	24 時間
	$t > 24$ 時間	10 日
温度 (T)	$T \leq 5^\circ\text{C}$	$5^\circ\text{C}$
	$5^\circ\text{C} < T \leq 20^\circ\text{C}$	$20^\circ\text{C}$
	$20^\circ\text{C} < T \leq 40^\circ\text{C}$	$40^\circ\text{C}$
	$40^\circ\text{C} < T \leq 70^\circ\text{C}$	$70^\circ\text{C}$
	$70^\circ\text{C} < T \leq 100^\circ\text{C}$	$100^\circ\text{C}$
	$100^\circ\text{C} < T \leq 121^\circ\text{C}$	$121^\circ\text{C}$
	$121^\circ\text{C} < T \leq 130^\circ\text{C}$	$130^\circ\text{C}$
	$130^\circ\text{C} < T \leq 150^\circ\text{C}$	$150^\circ\text{C}$
	$T > 150^\circ\text{C}$	$175^\circ\text{C}$

(3) 食品擬似溶媒量と試験試料表面積の割合

食品擬似溶媒と試験試料の接触割合は、原則として表面積  $1\text{cm}^2$  あたり 2ml で実施する。充填法で実施する場合はこの限りではない。

4) 溶出物の分析方法

(1) 分析対象物質

食品擬似溶媒中への溶出物の分析対象物質は表3の通りとする。

表3 食品擬似溶媒中の溶出物の分析対象物質

評価対象物質	分析対象物質
ポリマー	a 使用モノマー b オリゴマー ( $M_n \leq 1000$ ) 等不純物 c 蒸発残留量
添加剤	a 当該物質 b 不純物

(2) 検出限界、定量限界の求め方とハリテーション（回収率、精度）の実施方法

食品擬似溶媒中の分析対象物質の検出限界、定量限界の求め方と溶出物の溶出濃度分析結果の妥当性を検証するために表4に示す方法でハリテーションを実施する。

表4 溶出物の検出限界、定量限界求め方とハリテーション方法

項目	目標値
検出限界	食品擬似溶媒 (n=5) のブランク平均値+3σ
定量限界	食品擬似溶媒 (n=5) のブランク平均値+10σ
ハリテーション方法	<p>1 使用試験溶媒 対象物質の最高溶出濃度を示す溶出液</p> <p>2 対象物質の添加量 最高溶出濃度の 1/2, 1, 2 倍の 3 水準</p> <p>3 側定回数 n=3</p> <p>4 回収率と精度 次の a 又は b を満足すること。</p> <p>a 食品擬似溶媒中の溶出濃度 &lt; 0.1 ppm の時 イ 平均回収率 60~110% ロ 標準偏差 &lt; 20%</p> <p>b 食品擬似溶媒中の溶出濃度 &gt; 0.1 ppm の時 イ 平均回収率 80~110% ロ 標準偏差 &lt; 10%</p>

尚、対象物質が不検出の場合、対象物質の検出限界量を食品擬似溶媒に添加しブランク値と比較して 3σ 以上であることを確認して検出限界のハリテーションとする。

### (3) キャリブレーションの作成法

標準物質の規定量を正確に秤量して不純物を含有しない溶媒に溶解し標準溶液を作成する。標準溶液は 5 水準までできるだけ等間隔になるようにする。また標準溶液の濃度範囲は、対象物質の溶出濃度を含むようにキャリブレーションカーブを作成する。

### (4) スペクトル、クロマトグラムの例示

機器分析で側定し定性、定量分析に供したスペクトルやクロマトグラムを例示し、主なピークの同定を代表チャートに記述する。

### (5) 分析結果の記載方法

分析対象物質について、(2)に示した方法で実施した検出限界、定量限界、回収率、標準偏差を求めた後、精度から有効数字を考慮して分析結果を記載する。側定値 (n=3) は全て記載し、平均値も計算して記載する。異常値がある場合は考察してそれを除く。溶出濃度の単位は mg/dm<sup>2</sup> 表面積または mg/kg 食品(擬似溶媒)で記載する。

## 4 推定一日摂取量 (EDI)

推定一日摂取量は正確な消費係数及び食品分配係数が確立された後は下記の 2) の計算により求める。それまでは 1) の計算法を採用する。

1) 最高溶出濃度を用いる EDI の算出

$$EDI = Q_m \text{ (又は } Q_e) \times S/W = 0.12 \times Q_m \text{ (又は } Q_e) \text{ (mg/kg 体重/日)}$$

$Q_m$  当該物質の最大溶出濃度 (mg/dm<sup>2</sup>)

$S$  成人一人か一日摂取する食品のうち包装された食品と接触する容器包装材料の面積 (6dm<sup>2</sup>/日)

$W$  成人一人の体重 (50kg)

$Q_m$  の代わりに  $Q_e$  を用いれば、溶出試験は省略できる。

$Q_e$  包装材料中に存在する当該物質の量を単位面積(dm<sup>2</sup>)あたりに換算した値で次の式から求められる。

$$Q_e = \rho \times C \times t \times 10^2 \text{ (mg/dm}^2\text{)}$$

$\rho$  包装材料の密度(mg/cm<sup>3</sup>)

$C$  容器包装材料中の当該物質の最大濃度(重量%)

$t$  容器包装材料の最大厚さ (mm)

2) 一日摂取する食品中の平均濃度(DC)を用いる EDI の算出

$$EDI = F_w \times DC = 1 \times 10^6 \times DC \text{ (mg/人/日)}$$

$$= 2 \times 10^4 \times DC \text{ (mg/kg 体重/日)}$$

$$\langle M \rangle = f_{\text{水性}}(M)_{\text{水}} + f_{\text{酸性}}(M)_{\text{3\%酢酸}} + f_{\text{酒類}}(M)_{\text{20\%エタノール}} + f_{\text{油性}}(M)_{\text{油性}}$$

$$DC = \langle M \rangle \times CF$$

$CF$  消費係数

$f_{Ti}$  当該樹脂包装で包装された食品の割合 (食品分配係数)

$(M)_i$  各食品 (擬似溶媒) 中への溶出濃度 (mg/kg 食品)

$\langle M \rangle$  重量平均溶出濃度 (mg/kg 食品)

$F_w$  成人一人(50kg)か一日に摂取する容器包装で包装された食品の重さで、1kg/人/日とみなす

5 毒性試験と TDI (ADI)

1) 試験試料

毒性試験に供する対象物質の試料は表 5 に示す通りとする。

表 5 毒性試験に用いる試料

評価対象物質	毒性試験対象物質
ポリマー	①使用モノマー ②検出された $M_n \leq 1000$ のオリコマー*等の不純物
添加剤	①当該物質 ②検出された不純物

\*オリコマーは①溶出物又は②合成類似物 (溶出オリコマーの平均分子量、分子量分布、組成等について同等性を示すデータを予め提示する) を用いる。

## 2) 必要となる毒性試験

安全性評価の対象物質はポリマーの場合は使用モノマーと検出されたオリコマー等の不純物、溶出濃度に応じて表 6 に示すような毒性試験が必要となる。但し、ポリマーの場合の使用モノマー、添加剤の場合の当該物質は、溶出濃度が不検出であっても 3 種の変異原性試験を実施する。また使用モノマーや当該添加物および検出された物質の溶出濃度と必要な毒性試験の関係は表 6 の通りとする。

表 6 溶出濃度と必要な毒性試験の種類

溶出濃度	毒性試験の種類
① $\leq 50\text{ppb}$ ( $\leq 0.01\text{mg}/\text{dm}^2$ )	以下のうち 3 種類の変異原性試験 ①微生物を用いる復帰突然変異試験 ②哺乳類培養細胞を用いる染色体異常試験 ③in vitro マウスリンフォーマ TK 試験 ④げっ歯類を用いる小核試験
② $50\text{ppb} \sim 5\text{ppm}$ ( $0.01\text{mg}/\text{dm}^2 \sim 1\text{mg}/\text{dm}^2$ )	3 種変異原性 + 90 日経口毒性
③ $> 5\text{ppm}$ ( $> 1\text{mg}/\text{dm}^2$ )	3 種変異原性 + ①慢性 [含発癌性] 毒性 ②生殖・繁殖性毒性 ③催奇形性 ④代謝等

但し、毒性試験は OECD, FDA レットブック、厚生労働省のいずれかで定められた試験法に従い、FDA, 厚生労働省の GLP 取得試験機関で実施すること。

## 3) TDI (ADI) 算出のための安全係数

TDI (ADI) を求めるための安全係数は、毒性試験の種類により表 7 を基本とする。但し、最終的な判断は専門家に委ねる。

表 7 毒性試験の種類と安全係数

毒性試験の種類	安全係数
① 90 日経口毒性	1000
② 経口慢性毒性	100
③ 生殖毒性	100 (重篤な場合 1000)

TDI (ADI) は夫々の最大無毒性量(NOAEL)を安全係数で除して求める。

## 6 安全性評価ガイドライン

当該物質を目的の使用条件下で使用した場合、食品擬似溶媒への溶出物の安全性は下記の基準で判断する。

### 1) 検出限界 (食品擬似溶媒中で $10\text{ppb}$ ( $0.002\text{mg}/\text{dm}^2$ )) 以下の場合

潜在的溶出物質は、安全性判断の対象とはならない。ただし、原則として食品に対して色、味、臭い、殺菌、防腐等機能の影響、作用を及ぼしてはならない。

- 2) 溶出濃度が 50ppb(0.01mg/dm<sup>2</sup>) 以下の場合  
3 種の変異原性試験結果が陰性の場合には安全とみなす
- 3) 溶出濃度が 50ppb～5ppm(0.01mg/dm<sup>2</sup>～1mg/dm<sup>2</sup>)の場合  
3 種の変異原性試験結果が陰性で、且つ TDI(ADI)が EDI より大きい場合は安全とみなす。
- 4) 溶出濃度が 5ppm (1mg/dm<sup>2</sup>)以上の場合  
3 種の変異原性試験結果が全て陰性で、TDI(ADI)が EDI より大きく、且つ他の特殊毒性試験で異常が観測されない場合安全とみなす。
- 5) 発癌性成分（不純物）  
基ポリマー又は添加剤を製造するための必須原材料(モノマー等の成分)が発癌性物質(ただし、イニシエータ発癌性物質は除く)であっても、当該製品（基ポリマー、添加剤）が発癌性を示さなければ、当該成分の推定一日摂取量と実質安全な量（VSD=10<sup>-6</sup>リスク）を求めて当該専門家の判断に委ねる。

以上

## リサイクル包装材の安全性確保に関する研究

主任研究者 河村 葉子 国立医薬品食品衛生研究所

### 研究要旨

容器包装リサイクル法により回収されたポリエチレンテレフタレート (PET) 製飲料ボトルは、粉砕、洗浄等の物理的再生処理が行われたあと、繊維や日用雑貨などの原料に用いられ、一部は PET ノートとして、卵、野菜、果実等のパック、ケース、トレイなどに使用されている。一方、化学分解や固相重合による再生が試験的に行われており、さらに化学分解による再生処理工場が 2003 年より本格稼働を始めた。

そこで今年度は、我が国で流通している PET 再生品を中心にして、それらの食品衛生上の問題点等を明らかにするために、残存する化学物質の調査を行った。再生品試料として、全国 50 ヶ所の物理的再生処理工場から供与を受けた再生フレーク 92 検体、試験的に製造された化学的再生品 2 検体及び固相重合再生品 3 検体、さらに物理的再生品を使用したノートについて試験を行った。また、化学物質の由来を明らかにするために新品ペレットや使用済みボトル等についても試験した。対象物質は、エタノール、アセトン、リモネン等の揮発性物質、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド及び PET オリコマー類、並びに鉛、カドミウム、ケルマニウム、アンチモン等の金属類であった。

その結果、固相重合及び化学的再生品は、いずれの化合物も新品ペレットとほぼ同等かそれ以下の含有量であった。一方、物理的再生品は、エタノールやリモネンなどの揮発性物質が検出されたか、食品衛生上特に問題となる化合物は検出されなかった。さらに、物理的再生品を用いて製造した PET ノートからは揮発性物質はほとんど検出されず、製造工程で除去された。また、物理的再生品中のホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、オリコマー類、金属類の含有量は新品ペレットまたはボトルと同程度であった。

このように、化学的再生品及び固相重合再生品はもちろん、物理的再生品においても、食品衛生上特に問題は見られなかった。しかし、平成 14 年度の報告書で述べたように、再生品においては予期できない誤用等により生じるおそれがある汚染についても留意する必要がある。そのため、そのような汚染も完全に除去できることが証明された再生法では、使用制限なしに新品と同様に使用することかできるか、それか十分でない場合には新品樹脂による機能性ハリアや、対象食品や使用温度の制限などの対策を講じ、その安全性を十分に確保する必要がある。

## 研究協力者

芳田誠一、大橋一郎、小林正行、東 貴夫、  
米ノ井章男、堀口 誠、小杉昭和、山下裕二、  
矢萩正義、越智明宏、中塚 一、山本幸司、  
新美宏二 PET ホトルリサイクル推進

### 協議会

大西克己、内海正顕、葎口幸次、北川広信、  
香山 博、山本悦夫、山田昇一郎、佐多永行

### PET トレイ協議会

佐藤 昇、仲井保樹、月出正之、徳和目睦男

### ポリオレフィン等衛生協議会

稲田修司、杉本 毅 (株)アイエス

佐藤和広 帝人ファイバー

久保直紀 中央化学(株)

歌島秀明、西江昌展 (株)エフピコ

辰農 隆 食品衛生指定検査機関協会

小瀬達男 (財)化学技術戦略推進機構

六鹿元雄、大門由佳

### 国立医薬品食品衛生研究所

## A 研究目的

家庭から排出されるごみのうち、容積比で約 60 %が容器包装廃棄物、その半分の約 30 %が食品及び飲料用容器包装であったことから、廃棄物の排出量を抑制するとともに、分別収集を行って再商品化することにより資源の有効利用を図る循環型社会の構築を目的として、1997 年 4 月に容器包装リサイクル法が施行された。この法律により、ガラスびん、スチール缶、アルミ缶、紙パンクなどとともに、ポリエチレンテレフタレート(PET)製の飲料やしょう油ボトルが分別収集されることとなった。また、発泡ポリスチレン(PS)製トレイなども、同様の目的で自主回収されている。

回収された PET ホトル及び PS トレイは、選別、粉碎、洗浄等の物理的再生処理の後、

日用雑貨、繊維などで利用されているほか、食品分野においても、主に機能性ハリアと呼ばれる新品レンン層を食品との接触面としたトレイやパンク等が製造され流通している。

一方、使用済みプラスチックを再生する方法として、前述の物理的再生処理のほか、プラスチックを化学的に分解して原料モノマーに戻し、再び重合してポリマーにする化学分解法、及び PET においては物理的再生処理後、アルカリ処理及び固相重合処理により不純物の除去と重合度の回復を行う超洗浄法がある。我が国では今年度から化学分解処理工場が本格的な稼働を始め、2004 年 4 月からはそれを用いた PET ホトルの製造が始まった。

再生プラスチックを食品用の器具・容器包装に使用するためには、その製品が食品に有害な影響を与えて人の健康に危害を及ぼすことかないという安全性を保証することか重要な課題となる。そこで、本研究では安全性を確保するための考え方、方策等についてこれまで検討を行ってきた。

平成 13 年度は、PET を中心にして欧米等におけるリサイクル包装材の使用状況、安全性確保のための承認システムやカイトライン、承認状況等の調査を行った。その結果、米国をはじめヨーロッパ、オーストラリア等では、再生プラスチックの食品への使用に際して各国で承認または法規制を行っていること、米国 FDA、ドイツ BfR(前 BgVV)などではそのためのカイトランスやカイトラインを設定していること、さらに米国ではカイトランスの改正を準備しており、また EU ではカイトライン制定に向けて審議が行われていることなどか明かとなった。

そこで平成 14 年度は、再生プラスチック



を食品用途に使用するための、米国、ドイツ及び EU における安全性確保システム及びこれらのカイトラインを詳細に検討し、我が国における再生プラスチックの安全性確保のためのカイトラインとなるべき基本的な考え方をまとめた。

さらに今年度は、全国 50 ヶ所の再生処理工場より入手した PET の物理的再生フレークを中心に、化学分解による再生ペレット及び固相重合を試験的に行ったフレーク等について、その残存物質の試験を行った。対象とした化学物質はリモネン、エタノール、アセトン等の揮発性物質、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、PET オリゴマー類、及びカドミウム、鉛、アンチモン、ケルマニウムなどの金属類である。

## B 研究方法

### 1 試料

物理的再生処理による再生 PET フレーク（物理的再生品） 全国の物理的再生処理によるリサイクル工場 50 ヶ所より 2002 年 3 月及び 8 月（冬季及び夏季回収分の相当）に供与を受けた 58 検体及び 34 検体の合計 92 検体。

固相重合処理による再生 PET フレーク（固相重合再生品） 国内の物理的再生処理工場で物理的再生処理後、試験的にアルカリ処理及び固相重合を行ったもの 2 検体及び国内の超洗浄テストプラントより供与を受けたもの 1 検体の合計 3 検体。

化学分解法による再生 PET ペレット（化学的再生品） 国内の化学分解法による再生工場及びテストプラントより供与を受けたもの 2 検体。

新品 PET ペレット、新品ボトル PET 樹脂の製造業者、輸入業者及び加工業者より供

与を受けたもの。

使用済みボトル ミネラルウォーター、醤油、飲料、焼酎、茶、スポーツ飲料、炭酸飲料及び紅茶などを充填して市販されていたもの。内容物を除去し、水洗乾燥後試料とした。

PET シート 新品樹脂のみの単層構造 1 検体及び三層構造 3 検体、再生品のみの単層構造 2 検体及び三層構造 2 検体、中間層が再生品で表面が新品樹脂の三層構造 5 検体の合計 14 検体。

## 2 揮発性物質

### 1) 試薬

揮発性物質標準品 エタノール、アセトン、酢酸エチル、2-メチル-1,3-ジオキソラン、ヘキサナール、エチルヘンセン、オクタナール、リモネン、ノナナール（以上純度 95.0 % 以上）、ペンタナール（純度 85.0 %）

揮発性物質標準溶液 メタノールに標準品 10 種類を溶解して全量 100 mL としたものを標準原液とした。さらにメタノールで 1/2、1/4、1/10、1/20 及び 1/100 に希釈し、揮発性物質標準溶液とした。

### 2) 装置

ヘッドスペースサンプラ HP7694、Hewlett Packard 社製

ガスクロマトグラフィー／質量分析計（GC/MS） HP6890 Series PLUS、HP5973 以上 Hewlett Packard 社製

### 3) ヘッドスペースサンプラ操作条件

加熱温度 オフン 125 °C、サンプルループ 130 °C、トランスファーライン 135 °C  
加熱時間 45 分間、注入時間 0.5 分間  
ヘッドスペース導入量 1 mL

### 4) GC/MS 測定条件

カラム DB-VRX（長さ 30 m、内径 0.25 mm、膜厚 1.4 µm） J&W Scientific 社製

カラム温度 40 °C (4分)→20 °C/分 240 °C  
圧入口温度 250 °C  
インレット温度 280 °C  
キャリアガス He、130 kPa (0.5分)→50 kPa

イオン化電圧 70 eV、イオン加速電圧 1.8 kV、測定モード SCAN ( $m/z$  20 ~ 400)

#### 5) 検量線の作成

揮発性物質標準溶液またはメタノール 5  $\mu$ L をマイクロリッポンでとり、10 mL 容ヘントスペース用ハイアル瓶に入れて密封後、ヘントスペースサンプラ/GC/MSで測定し、ピーク面積から検量線を作成した。

#### 6) 試料の測定法

試料またはその細切したもの 1.0 g を精秤し、10 mL 容ハイアル瓶に入れて密封後、ヘントスペースサンプラ/GC/MS で測定し、検量線により定量した。

### 3 ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド及びPETオリゴマー

#### 1) 試薬

2,4-dinitrophenylhydrazine (DNPH) 塩酸塩 (HPLC 標識用)

ホルムアルデヒド-DNPH 及びアセトアルデヒド-DNPH 標準品

PETオリゴマー標準品

トリフルオロ酢酸(TFA)

水 市販の輸入ナチュラルミネラルウォーターでホルムアルデヒド及びアセトアルデヒド含有量の低いものを使用した。

#### 2) 装置

高速液体クロマトグラフ (HPLC) LC-10AD、SPD-10A、CTO-10A、SCL-10A、C-R7A plus 以上島津製作所製

#### 3) HPLC 測定条件

カラム TSKgel ODS-80Ts (4.6 mm i.d. ×

250 mm) TOSOH 社製

カラム温度 50 °C、圧入量 20  $\mu$ L

検出器 UV (360 nm 及び 254 nm)

移動相 アセトニトリル/水 (FA 及び AA は 55%、オリゴマーは 75%→95%まで 15分間のグラデーション)

#### 4) 試験溶液の調製法

試料 0.5 g を共栓付 50 mL 容遠心分離管に採り、DNPH/TFA 溶液 (1 mg/mL) を 2.5 mL 加えて一晩放置し、試料を溶解させた。その溶液にシクロロメタンを 10 mL 加え、さらに炭酸カリウム溶液 (0.2 g/mL) 約 12 mL を撹拌しながら徐々に加えて中和後、吸引ろ過した。シクロロメタン層を採取し、残った水層をシクロロメタン 10 mL で再度抽出した。シクロロメタン層を減圧下で濃縮乾固した後、アセトニトリル 2.5 mL に溶解して試験原液とした。試験原液 2 mL に水を加えて 5 mL に定容後、フィルターろ過をし、FA 及び AA 用試験溶液とした。また試験原液を 0.2 mL 採り、アセトニトリルで 20 mL に定容したものをオリゴマー用試験溶液とした。

### 4 金属類

#### 1) 試薬

鉛 (Pb)、カドミウム (Cd)、ゲルマニウム (Ge)、アンチモン (Sb)、チタン (Ti)、リン (P)、ケイ素 (Si)、鉄 (Fe) 標準液 1000 ppm, コバルト (Co)、アルミニウム (Al)、ナトリウム (Na)、カリウム (K)、カルシウム (Ca) 標準液 100 ppm (和光純薬工業等)

金属標準溶液 各金属標準液 13 種類を適当量採取して混合したのち 8% 硝酸で希釈して、各元素 5 ppm の金属標準原液とした。これを適宜希釈し金属標準溶液とした。

Milli-Q Milli-Q SP (Millipore 社製) により精製した超純水

## 2) 装置

マイクロウェーブ加熱処理システム  
ETHO S900 マイルストーンセネラル社製  
誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP/MS)  
7500 Series Agilent 社製

## 3) 試料の測定法

テフロン製マイクロウェーブ用分解容器に試料 0.3g を採取し、硝酸 8 mL を加えて Table 1 の条件で灰化した。冷後 Milli-Q を加えて 30 mL とし、遠心分離(回転数 毎分 1000、10 分間)した。その上清 2.5 mL をとり、Milli-Q を加えて 10 mL としたものを試験溶液とし、ICP/MS により定量した。

Table 1 マイクロウェーブ灰化条件

ステップ	時間(分)	出力(W)
1	2	250
2	3	0
3	5	250
4	5	400
5	5	600
6	20	400
7	5	0

## C 研究結果及び考察

### 1 揮発性物質

#### 1) 測定法

物理的再生、固相重合及び化学分解法で処理された再生品中の揮発性物質をヘントスペースサンプラー/GC/MS により測定した。また、揮発性物質の由来を明らかにするために、新品ペレット及び使用済みボトルについても測定した。さらに最終製品における残存を明らかにするために、各種PETシートについても測定した。

測定は、ハイアル瓶に試料を入れ、ヘントスペースサンプラーで加熱し、気相部分をGC/MS に導入することにより行った。測定対象とした揮発性物質は、物理的再生品から

検出されたエタノール、アセトン、酢酸エチル、2-メチル-1,3-シオキソラン、ヘキサナール、エチルヘンセン、オクタナール、リモネン、ノナナール及びペンタナールの 10 種類であった。

なお、ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドは本法では定量性が不十分であったことから、次項においてHPLCにより測定した。

本法における定量限界は、エタノール 10 µg/g、リモネン及び 2-メチル-1,3-シオキソラン 0.2 µg/g、アセトン、酢酸エチル、エチルヘンセン、ペンタナール、ヘキサナール、オクタナール及びノナナール 0.1 µg/g であった。

### 2) 新品ペレット及び新品ボトル

石油から合成された新品ペレット7検体及び新品ボトル4検体について揮発性物質の含有量を測定した(Table 2)。新品ペレットからは、10 種類の揮発性物質はいずれも検出されなかった。また、新品ボトルからは 2-メチル-1,3-シオキソランが一部からわずかに検出されたが、それ以外の化合物は検出されなかった。

2-メチル-1,3-シオキソランは、PET に残存する原料物質のエチレンクリコールと PET の熱分解により生成した酢酸が、加熱時に反応して生成することか知られている。ヘントスペースサンプラの加熱温度に対する挙動から、ボトル成形時だけでなく、ヘントスペース測定時においても生成すると推定され、この化合物の測定値は実際の含有量より高いことか考えられる。

### 3) 使用済みボトル

PET 再生処理の原料となる使用済みボトルの残存物を明らかにするために、ミネラルウォーター、清涼飲料、しょう油、みりん、焼酎が充填されていたボトルの揮発性物質を測

Table 2 新品ペレット及び新品ホトルにおける揮発性物質含有量

試料 (試料数)	揮発性物質含有量 (µg/g)									
	ethanol	Acetone	ethyl acetate	2M13D	pentanal	hexanal	ethylbenzene	octanal	limonene	nonanal
ペレット 検出頻度(%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
(7) 最小値	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
最大値	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
平均値	<0.1	<0.1	<0.1	<0.2	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.2	<0.1
ホトル 検出頻度(%)	0	0	0	25	0	0	0	0	0	0
(4) 最小値	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
最大値	ND	ND	ND	0.21	ND	ND	ND	ND	ND	ND
平均値	<0.1	<0.1	<0.1	<0.2	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.2	<0.1
定量限界	1.0	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.1

2M13D 2-methyl-1,3-dioxolane

Table 3 使用済みホトルにおける揮発性物質含有量

試料	内谷物	揮発性物質含有量 (µg/g)									
		ethanol	acetone	ethyl acetate	2M13D	pentanal	hexanal	ethylbenzene	octanal	limonene	nonanal
ホトル1	ウォーター	ND	ND	ND	0.25	ND	ND	ND	ND	ND	ND
ホトル2	ウォーター	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
ホトル3	ウォーター	ND	ND	ND	0.25	ND	ND	ND	ND	ND	ND
ホトル4	ウォーター	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
ホトル5	しょうゆ	55	ND	0.68	ND	ND	0.16	ND	0.12	ND	0.38
ホトル6	みりん	31	ND	4.80	ND	ND	0.14	ND	0.12	ND	0.60
ホトル7	焼酎	214.2	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.14
ホトル8	日本茶	ND	ND	0.28	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.10
ホトル9	スポーツ飲料	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.30	5.4	0.12
ホトル10	スポーツ飲料	ND	ND	0.15	ND	ND	ND	ND	ND	1.8	ND
ホトル11	スポーツ飲料	ND	ND	0.50	ND	ND	ND	ND	ND	8.0	ND
ホトル12	炭酸飲料	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	3.0	ND
ホトル13	炭酸飲料	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	9.3	0.14
ホトル14	紅茶ミルク	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
ホトル15	紅茶レモン	ND	ND	0.34	ND	ND	ND	ND	ND	6.4	0.14
ホトル16	紅茶レモン	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	2.0	ND
ホトル17	紅茶レモン	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	1.6	ND
ホトル18	オレンジ果汁	ND	ND	0.16	ND	ND	ND	ND	ND	6.1	0.10
ホトル19	オレンジ果汁	ND	ND	0.36	ND	ND	ND	ND	0.16	17.7	0.20
ホトル20	オレンジ果汁	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	8.8	ND
平均値		15.0	<0.1	0.37	<0.2	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	3.5	0.10
標準偏差		48.9	—	1.06	—	—	—	—	—	4.7	0.15
定量限界		1.0	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.1

2M13D 2-methyl-1,3-dioxolane

定した (Table 3)。

ミネラルウォーターのボトルでは、新品ボトルと同様に、2-メチル-1,3-シオキサランがわずかに検出されたのみで、他の化合物は検出されなかった。

その他の飲料等が充填されていたボトルでは、多くの揮発性物質が検出された。そのうち最も残存量が高かったのはエタノールで、焼酎のボトルが 214  $\mu\text{g/g}$  と最も高く、醤油及びみりんのボトルにもやや高濃度に検出された。また飲料自体を測定すると、使用済みボトルからは検出されなかったスポーツ飲料、炭酸飲料、オレンジ果汁等からも検出された。

次に高いのはリモネンで、オレンジ果汁、炭酸飲料、スポーツ飲料、レモンティなど多くの清涼飲料ボトルから 16 ~ 177  $\mu\text{g/g}$  検出された。リモネンは、もともと柑橘類等の精油成分であり、また着香料として清涼飲料には広範囲に添加されている。

酢酸エチルはみりんのボトルで 48  $\mu\text{g/g}$  とやや高く、醤油、スポーツ飲料、オレンジ果汁などのボトルからも検出された。これらの飲料に酢酸エチルそのものか含有されているのか、食品成分が保存時または測定時に分解して生成したのかは確認できなかった。

ノナナールは、みりん、醤油から検出されたほか、様々な清涼飲料ボトルからも微量ではあるが検出された。同じケトン類の類縁化合物であるオクタナール及びヘキサナールも、主にノナナールの含有量の高い試料から検出された。また、ペンタナールについては、いずれの試料も定量限界以下であったか、ヘキサナールと同様の試料で痕跡が認められた。また、飲料自体からもこれらのケトン類が検出された。

アセトン及びエチルヘンセンはいずれの使用済みボトルにおいても定量限界以下であっ

た。

#### 4) 物理的再生品

全国 50 ヶ所の物理的再生処理工場より入手した再生フレック、冬季分 58 検体及び夏季分 34 検体の合計 92 検体について、揮発性物質の含有量を測定し (Table 4)、その主な化合物の分布図を Fig 1 に示した。

物理的再生品に残存する揮発性物質のうち、最も高い含有量を示したのは使用済みボトルと同様にエタノールであり、平均 78  $\mu\text{g/g}$ 、最高では 436  $\mu\text{g/g}$  であった。これらはボトルに充填されていた酒、醤油、みりんや各種清涼飲料等に由来すると考えられた。

次に含有量が高かったのはリモネンで、冬季、夏季ともにすべての再生品から検出された。含有量は平均 09  $\mu\text{g/g}$ 、最高 25  $\mu\text{g/g}$  であった。リモネンは炭酸飲料やスポーツ飲料をはじめ様々な清涼飲料ボトルから検出されることから、これらの清涼飲料に由来することか明かである。欧米では再生品の残存物質の指標の一つとしている。

一方、アセトンは再生品からは 57 % と高頻度に検出されたか、含有量は平均 01  $\mu\text{g/g}$  と微量であった。新品ペレットや使用済みボトルからは検出されなかったか、飲料自体を測定すると、スポーツ飲料、レモンティ、オレンジ果汁などから検出された。また、下記の 6) で原料ボトルのランクの影響が大きく見られたことから、ボトルに残存した食品の分解等により生成する可能性も示唆された。

酢酸エチルは約 1/3 の試料から検出されたか、平均値は 01  $\mu\text{g/g}$  以下と微量であった。この化合物はみりん、醤油をはじめスポーツドリンクなどの使用済みボトルから検出されており、食品成分またはその分解物に由来すると推定された。

ヘキサナール、オクタナール及びノナナール

ルなどのケトン類は、再生品の 1/3 ~ 1/5 から検出された。また、一部からペンタナールも検出された。これらの化合物は、みりん、醤油、焼酎のほかいくつかの清涼飲料の使用済みボトルからも検出されており、充填されていた食品に由来すると推定された。

2-メチル-1,3-シオキソランも試料の 97 % から平均 0.3 mg/g と高頻度に検出された。この化合物は、2) で述べたように食品由来ではなく PET 樹脂由来であり、原料モノマーのエチレンクリコールと PET 樹脂分解物の酢酸が加熱時に反応して生成する。このことから測定値の一部は、ヘットスペース測定時の加熱により生成したものと考えられる。

また、回収時期による揮発性物質の残存量や検出頻度を比較してみると、リモネンや 2-メチル-1,3-シオキソランでは冬季と夏季に差はみられなかったが、エタノール、アセトン、酢酸エチルなどその他の化合物では、冬季の方が高頻度に検出された。この理由として、冬季の方が再生工程で用いる洗浄水の温度が低いいため、洗浄力が若干低いのではないかと推定された。

一方、今回測定したGC/MSのクロマトグラム上において、上記以外の化合物で食品衛生上問題と考えられる化合物は検出されなかった。

#### 5) 固相重合再生品及び化学的再生品

固相重合再生品として、物理的再生のあと試験的に固相重合を行った試料 2 検体、及び超洗浄の試験プラントから供与を受けたもの 1 検体、また化学的再生品として我が国の化学分解法による再生工場及びテストプラントで処理されたもの各 1 検体について、揮発性物質の含有量を測定した (Table 5)。

その結果、すべての試料においていずれの化合物も検出されなかったことから、揮発性

物質に関しては新品ペレットとほぼ同等と判断された。

#### 6) 物理的再生処理における原料ボトルのランク及び処理方法の影響

同一工場において試験的に原料ボトルのランクや処理方法を変化させた 6 種類の試料を比較するとともに、今回測定した物理的再生品 92 検体の揮発性物質含有量を原料の処理方法に従い分類し比較した。

##### ① 原料ボトルのランクの比較

日本容器包装リサイクル協会が認定する原料ボトルヘールのランクのうち、ボトルが水洗いされ内容物がほとんど残っていないランク A と中身が残っているものも含まれボトルが少し汚れているランク B について、水洗浄後に残存する揮発性物質量を比較した。

Fig 2 に示すように、リモネンや 2-メチル-1,3-シオキソランの含有量ではランク A の方がランク B よりも 20 % 程度低く、エタノール、アセトン、酢酸エチルでは約 1/3 と大幅に低かった。また、ランク B を温水洗浄したものと比較しても、ランク A の水洗いの方が低いか同程度であった。

このように原料ランクのレベルは、水洗浄か温水洗浄かといった処理工程の差異以上に再生品中の揮発性物質残存量に大きな影響を与えていた。

原料ランクの影響が特に大きく表れたエタノール、アセトン、酢酸エチルは、ボトルの内容物である食品もしくはその分解物由来であり、使用后すぐに洗浄されれば容易に除去されるか、残渣が残って樹脂に吸着されると、除去されにくくなるものと推定された。

##### ② 洗浄方法の比較

同一工場における水洗浄、温水洗浄、アルカリ洗浄及び固相重合の影響を Fig 2 に、物理的再生品冬季分 58 検体の洗浄方法による

Table 4 物理的再生品における揮発性物質含有量

試料 (試料数)		揮発性物質含有量 (μg/g)									
		ethanol	acetone	ethyl acetate	2M13D	pentanal	hexanal	ethylbenzene	octanal	limonene	nonanal
冬季 (58)	検出頻度	98	79	50	98	5	40	0	31	100	52
	最小値	ND	ND	ND	0.20	ND	ND	ND	ND	0.3	ND
	最大値	43.6	0.60	0.31	0.46	0.18	0.69	ND	0.22	2.0	0.39
	平均値	8.4	0.20	<0.1	0.27	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.9	<0.1
	標準偏差	7.1	0.11	—	0.09	—	—	—	—	0.4	—
夏季 (34)	検出頻度	100	18	6	94	0	9	0	3	100	6
	最小値	2.0	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.2	ND
	最大値	17.4	0.15	0.11	0.38	ND	0.11	ND	0.15	2.5	0.12
	平均値	6.7	<0.1	<0.1	0.26	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.9	<0.1
	標準偏差	4.1	—	—	0.09	—	—	—	—	0.4	—
全体 (92)	検出頻度	99	57	34	97	3	28	0	21	100	35
	最小値	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	0.2	ND
	最大値	43.6	0.60	0.31	0.46	0.18	0.69	ND	0.22	2.5	0.39
	平均値	7.8	0.14	<0.1	0.27	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.9	<0.1
	標準偏差	6.2	0.12	—	0.09	—	—	—	—	0.4	—
定量限界		1.0	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.1

2M13D 2-methyl-1,3-dioxolane 検出頻度 (%)

Table 5 固相重合及び化学的再生品における揮発性物質含有量

試料	揮発性物質含有量 (μg/g)										
	ethanol	acetone	ethyl acetate	2M13D	pentanal	hexanal	ethylbenzene	octanal	limonene	nonanal	
固相重合 1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
固相重合 2	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
固相重合 3	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
化学的再生 1	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
化学的再生 2	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	
定量限界		1.0	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.1

2M13D 2-methyl-1,3-dioxolane

Table 6 シートにおける揮発性物質含有量

試料	層構成	揮発性物質 (μg/g)									
		ethanol	acetone	ethyl acetate	2M13D	pentanal	hexanal	ethylbenzene	octanal	limonene	nonanal
シート 1	V	ND	ND	ND	0.21	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 2	V/V/V	ND	ND	ND	0.32	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 3	V/V/V	ND	ND	ND	0.25	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 4	V/V/V	ND	ND	ND	0.43	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 5	R	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 6	R	ND	ND	ND	0.25	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 7	R/R/R	ND	ND	ND	0.21	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 8	R/R/R	ND	ND	ND	0.32	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 9	R	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 10	V/R/V	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 11	V/R/V	ND	ND	ND	0.21	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 12	V/R/V	ND	ND	ND	0.25	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 13	V/R/V	ND	ND	ND	0.25	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シート 14	V/R/V	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND
定量限界		1.0	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.1

2M13D 2-methyl-1,3-dioxolane

V 新品 R 再生品

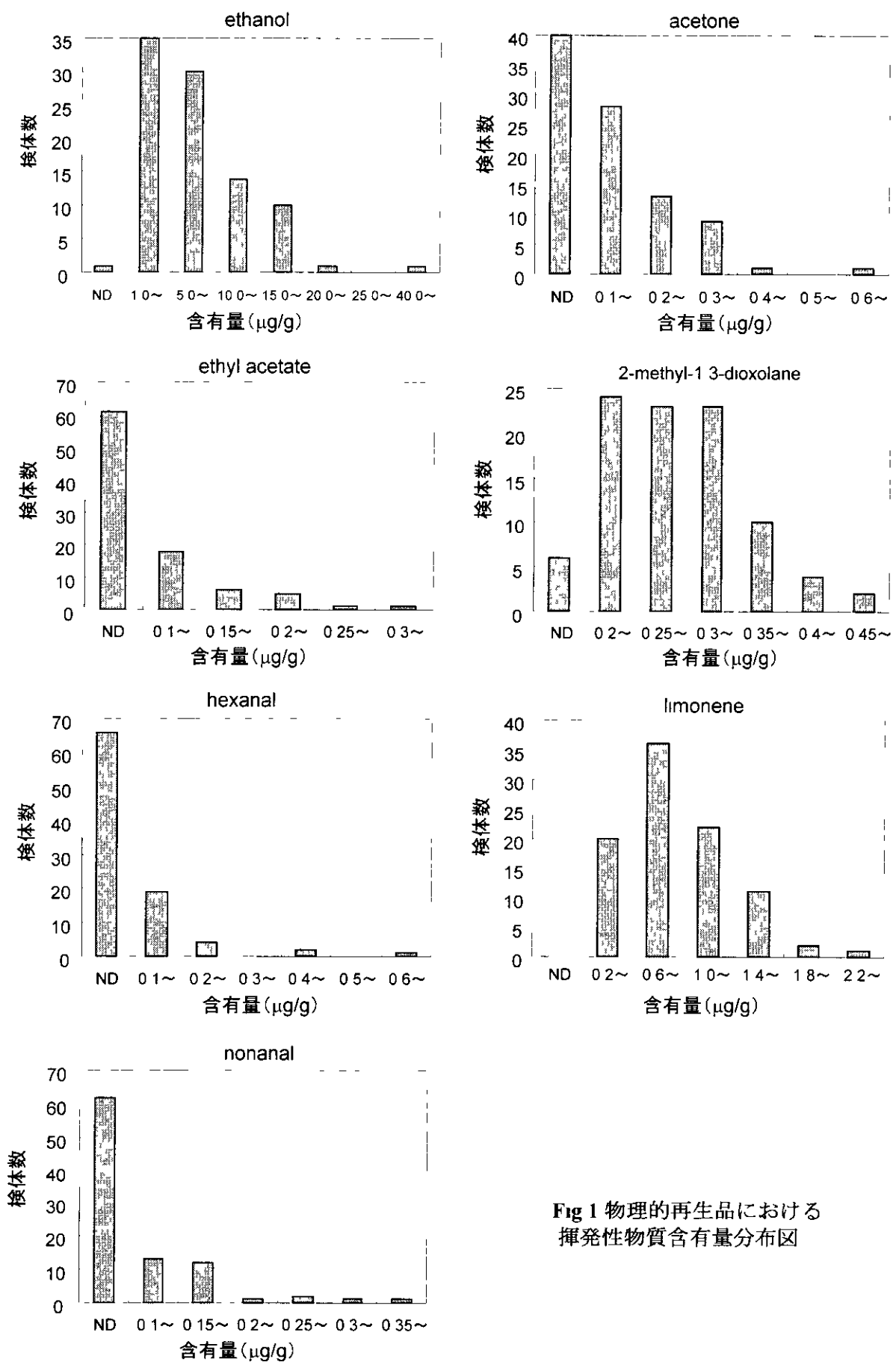


Fig 1 物理的再生品における揮発性物質含有量分布図



含有量分布を Fig 3 に示した。

Fig 2 に示すように、同じランク B の原料を使用した水洗浄 1 と比較すると温水洗浄でアセトン、リモネンでは 2 割程度残存量が低下し、エタノールでは約 1/3 と大幅に減少した。しかし、酢酸エチルや 2-メチル-1,3-シオキソランでは差はみられなかった。

また、アルカリ処理については、同じ原料ランク A の水洗浄 2 と比較して、リモネンでは含有量の有意な減少がみられたか、エタノール、アセトン、酢酸エチルではかえって増加した。

Fig 3 に示すように、物理的再生品試料を再生処理方法により分類すると、工場毎に水量、洗浄時間、洗浄回数などに差があるためはらつきが大きく、同一工場における比較のような大きな差はみられなかった。それでも、温水洗浄によりリモネンやエタノールの残存量は低下傾向を示し、水洗浄よりも洗浄効果が高いことが示された。しかし、その効果は他の化合物では必ずしも顕著ではなかった。

また、アルカリ処理ではリモネンは明らかに減少し、2-メチル-1,3-シオキソランでもやや減少傾向がみられた。また、Fig 2 で増加が見られたアセトンは減少がみられたか、エタノールではやはり増加の傾向がみられた。

このようにアルカリ洗浄はリモネン等の除去には効果的であるか、エタノールではかえって増加傾向がみられた。このことは、アルカリにより残存した食品成分が分解し、エタノールが新たに生成した可能性を示唆している。ただし、アルカリ洗浄の本来の目的は、水洗浄では除去しにくい脂肪分やタンパク質等を除去することであり、エタノール等の増加は、分子量の大きい化合物が分解されたためと考えられる。また、分子量の大きい化合物については今回検討しておらず、揮発性物

質の増加だけでアルカリ洗浄の有用性を議論することはできない。

ヨーロッパやオーストラリアで実用化されている超洗浄処理の中心技術である固相重合処理については、Fig 2 に示すようにすべての揮発性物質が 3 時間で消失した。高温真空下で長時間処理するため、樹脂中の揮発性物質は容易に揮散すると考えられ、揮発性物質に対して極めて有効な処理方法であることが確認された。

## 7) PET シート

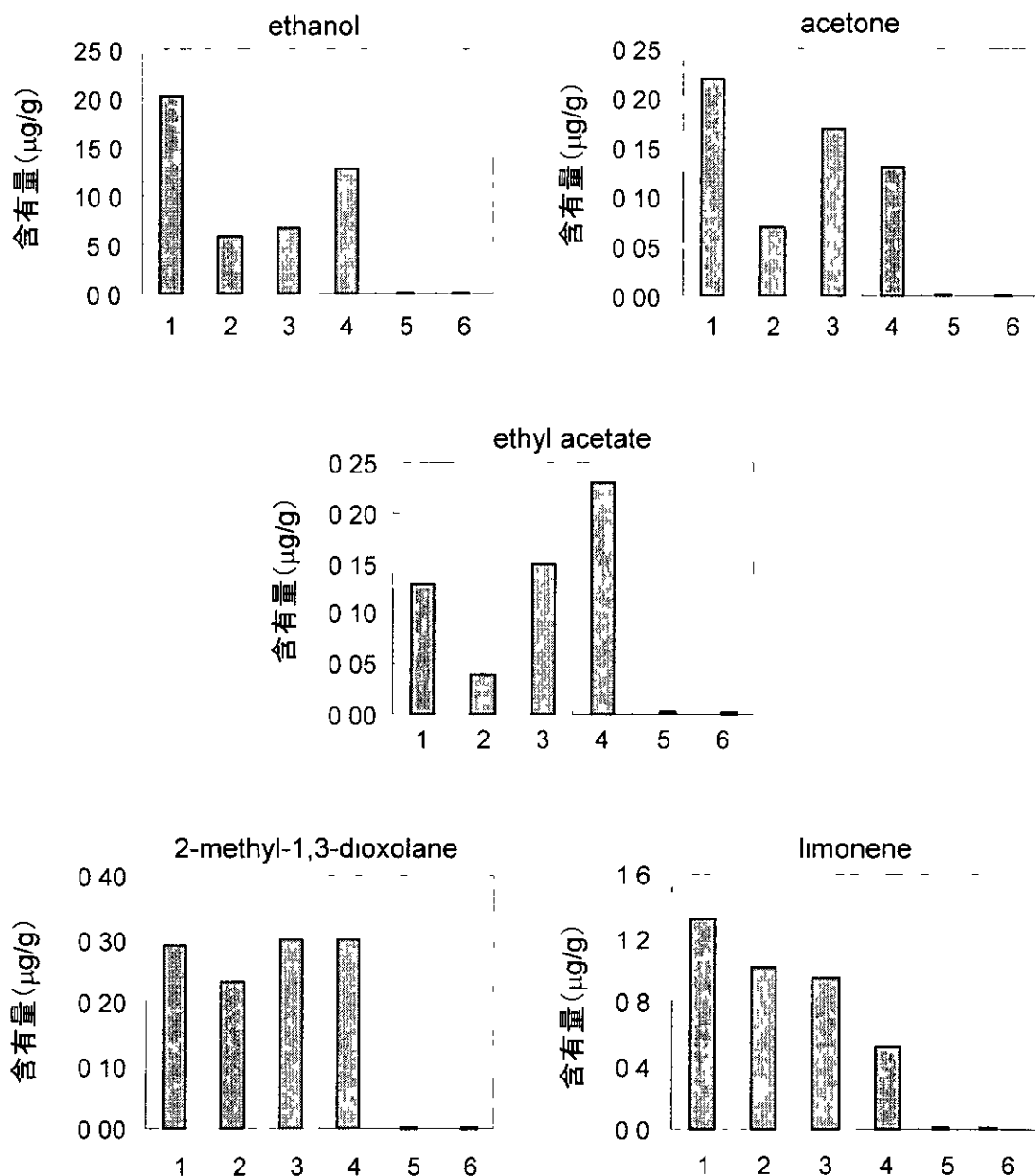
物理的再生品を用いた製品のうち、現在食品用途で実用化されているのは、PET シートを成形したパック、トレイ、ケースなどのみである。そこで、新品ペレットや再生品ペレットを用いた各種 PET シートについて、揮発性物質の含有量を測定した (Table 6)。

その結果、新品樹脂のみのシートや表面か新品で中間層か再生品のシートだけでなく、再生品のみのシートにおいても、2-メチル-1,3-シオキソランを除き、いずれの揮発性物質も検出されなかった。また、唯一検出された 2-メチル-1,3-シオキソランも、新品と再生品で含有量に差は見られなかった。物理的再生品に残存していた揮発性物質はシート成形工程の加熱と脱気により揮散したものと推定された。

以上のことから、揮発性物質に関しては原料か新品か再生品かで成形されるシートに差異が認められないことが示された。

## 8) まとめ

揮発性物質を指標とすると、化学的再生品や固相重合再生品ではいずれの化合物も検出されず、新品ペレットとほぼ同等と考えられた。一方、物理的再生品からはリモネン、エタノールなどの揮発性物質が若干検出されたか、いずれも食品由来であり、またそれ以外



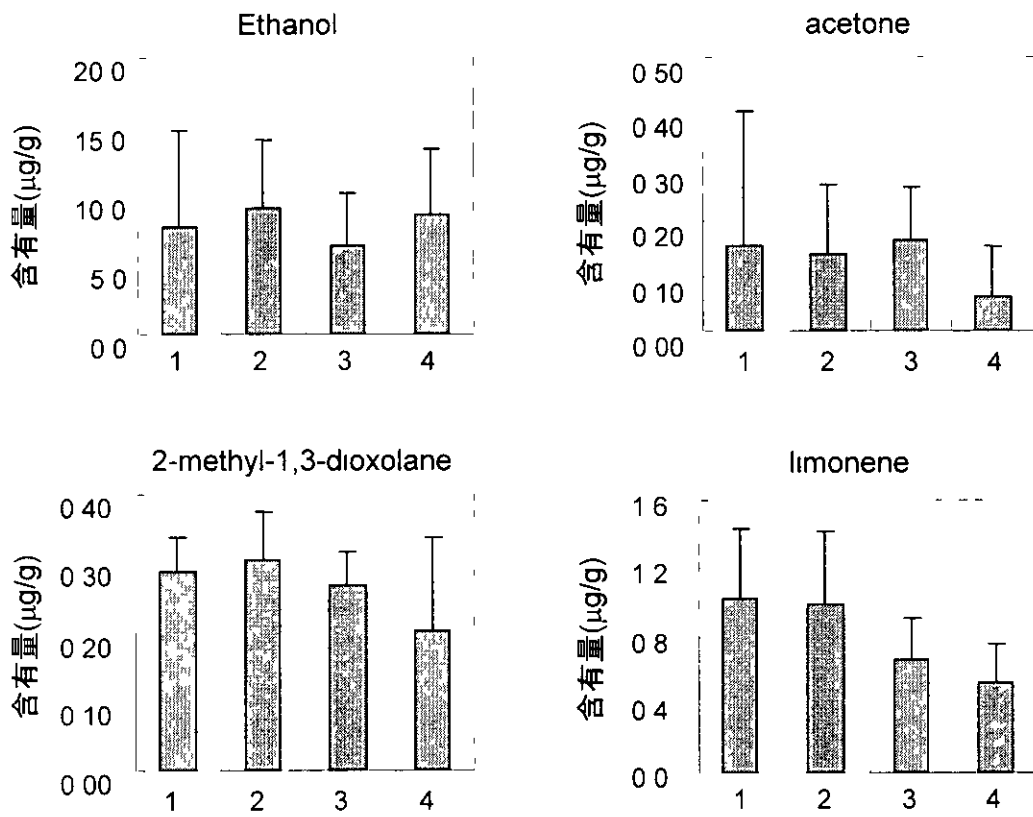
**Fig.2** 同一工場における原料ボトルヘールの品質ランクと処理方法の異なる再生品の比較  
処理方法

1 水処理(ランクB)、2 水洗浄(A)、3 水洗浄後温水処理(B)、4 水洗浄後アルカリ処理(A)、  
5 水洗浄後3時間の固相重合(A)、6 水洗浄後15時間の固相重合(A)

原料ヘールの品質ランク

(A)キャップなし、水洗いしてある、中身の残りが少ない、ボトルにつやがある

(B)キャップほとんとなし、中身が残ったものもあり、ボトルが少し汚れている



**Fig 3** 物理的再生品の揮発性物質含有量と処理方法の比較  
 処理方法 1 水洗浄のみ、2 水洗浄+物理洗浄、3 水洗浄+温水洗浄、  
 4 水洗浄+アルカリ処理

の食品衛生上問題となる物質は検出されなかった。

さらに、物理的再生品を用いて成形したシートにおいては、シート成形工程における加熱と脱気により揮発性物質が除去され、新品との差異は見られなかった。

## 2 ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド及びPETオリコマー

### 1) 測定法

ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドは、揮発性物質の分析に用いたヘッドスペースサンプラー/GC/MS 法では熱分解を生ずるため定量性に問題があった。そこで既報<sup>1)</sup>に従い、室温でシニトロフェニルヒトランンにより誘導体化したのち、高速液体クロマトグラフィーで定量した。また同時に PET 重合時の副生成物である PET トリマー及び総オリコマー (3 量体～8 量体) の含有量も測定した。

定量限界は、ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドが 0.5 µg/g、トリマー及び総オリコマーが 0.1 mg/g であった。

### 2) 新品ペレット及び使用済みボトル

新品ペレット 10 検体及び使用済みボトル 13 検体の測定結果を Table 7 及び Table 8 に示した。

ホルムアルデヒドは、新品ペレットではすべて定量限界以下であったが、使用済みボトルでは平均 13 µg/g であった。またアセトアルデヒドは、新品ペレットでは平均 74 µg/g、使用済みボトルでは平均 106 µg/g であった。ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドは PET の熱分解により生成する<sup>2)</sup> ことから、樹脂の重合工程で生成し、さらにボトル成形時の加熱により増加したものと考えられた。ホルムアルデヒドやアセトアルデヒドは発酵食品や柑橘系飲料などに天然に含有されること

か知られているか、それらの食品に由来すると思われる顕著な増加はみられなかった。

一方、オリコマーは、トリマー量、総オリコマー量ともに、新品ペレットと使用済みのミネラルウォーターボトル、その他のボトルでほとんど差がみられなかった。すなわち、これらの化合物は重合時に生成したものであり、ボトル成形時や食品由来の増加はないことか確認された。

### 3) 物理的再生品

全国 50 ヶ所の物理的再生処理工場より入手した再生フレック、冬季分 58 検体及び夏季分 34 検体の合計 92 検体について、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド及びオリコマーの含有量を測定した (Table 9)。

全体の平均値は、ホルムアルデヒド 22 µg/g、アセトアルデヒド 131 µg/g、トリマー 45 mg/g、総オリコマー 67 mg/g であり、使用済みボトルよりやや高いか同程度であった。また、試料によるばらつきも、季節による変動もあまり大きくなかった。

これらの化合物は PET 樹脂に由来して生成し、樹脂内部に存在するため、水等による表面の洗浄では除去されにくく、物理的再生工程ではほとんど減少していない。しかし、これらの含有量は新品とも大差なく、食品衛生上問題があるとは思われなかった。

### 4) 固相重合再生品及び化学的再生品

固相重合再生品及び化学的再生品は、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、オリコマー類のいずれも、物理的再生品よりも低く、新品ペレットとほぼ同程度かやや低かった。

固相重合処理を行った試料 1 及び 2 を比較してみると、いずれの化合物も処理時間が長い試料 2 の方が残存量の減少が大きかった。固相重合では高温で脱気を行うことから、その間に物理的処理では除去が困難な樹脂内部